

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

PCT Application  
PCT/JP2002/010282



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference RDC43M/PCT	FOR FURTHER ACTION	See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/JP02/10282	International filing date (day/month/year) 02 October 2002 (02.10.02)	Priority date (day/month/year) 26 March 2002 (26.03.02)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C01G 1/00, 33/00, 35/00		
Applicant JAPAN SCIENCE AND TECHNOLOGY AGENCY		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 6 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 04 August 2003 (04.08.03)	Date of completion of this report 05 November 2003 (05.11.2003)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP02/10282

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
 pages 1-4, 7, 9-13, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages 5, 5/1, 6, 8, filed with the letter of 27 October 2003 (27.10.2003)
- ☒ the claims:  
 pages 5, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages 1, 2, 7, filed with the letter of 27 October 2003 (27.10.2003)
- ☒ the drawings:  
 pages 1/3-3/3, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. 3, 4, 6
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/JP 02/03081

**Supplemental Box**

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: III.1

Claims 15 and 20 set forth procedures for the actions that are conducted by an applicant when applying for a certificate or by an employee of the local government authority when issuing a certificate; therefore, these procedures correspond to schemes, rules or methods of doing business, performing purely mental acts or playing games under the provisions of PCT Rule 39.1(iii).

## 特 許 協 力 条 約

PCT

## 国際予備審査報告


(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 21 NOV 2003

WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号 RDC43M/PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP02/10282	国際出願日 (日.月.年) 02.10.02	優先日 (日.月.年) 26.03.02
国際特許分類 (IPC) Int Cl <sup>7</sup> C01G1/00 C01G33/00 C01G35/00		
出願人 (氏名又は名称) 独立行政法人 科学技術振興機構		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- ☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 6 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
  - II ☐ 優先権
  - III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
  - IV ☐ 発明の単一性の欠如
  - V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
  - VI ☐ ある種の引用文献
  - VII ☐ 国際出願の不備
  - VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 04.08.03	国際予備審査報告を作成した日 05.11.03	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員)	4G 9343
	大工原 大二 	電話番号 03-3581-1101 内線 3416

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

- |   |   |              |        |                         |
|---|---|--------------|--------|-------------------------|
| <input checked="" type="checkbox"/> 明細書   | 第 | 1-4, 7, 9-13 | ページ、   | 出願時に提出されたもの             |
| 明細書                                       | 第 |              | ページ、   | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの    |
| 明細書                                       | 第 | 5, 5/1, 6, 8 | ページ、   | 27.10.03 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input checked="" type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 | 5            | 項、     | 出願時に提出されたもの             |
| 請求の範囲                                     | 第 |              | 項、     | PCT19条の規定に基づき補正されたもの    |
| 請求の範囲                                     | 第 |              | 項、     | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの    |
| 請求の範囲                                     | 第 | 1, 2, 7      | 項、     | 27.10.03 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input checked="" type="checkbox"/> 図面    | 第 | 1/3-3/3      | ページ/図、 | 出願時に提出されたもの             |
| 図面  | 第 |              | ページ/図、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの    |
| 図面  | 第 |              | ページ/図、 | 付の書簡と共に提出されたもの          |
| <input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分       | 第 |              | ページ、   | 出願時に提出されたもの             |
| 明細書の配列表の部分                                | 第 |              | ページ、   | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの    |
| 明細書の配列表の部分                                | 第 |              | ページ、   | 付の書簡と共に提出されたもの          |

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出された磁気ディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された磁気ディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列と磁気ディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 3, 4, 6 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1、2、5、7	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲	1、2、5、7	有
	請求の範囲		無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1、2、5、7	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求項1、2、5、7について(新規性・進歩性あり)  
 国際調査報告で引用された文献1-3にはメソポーラス遷移金属複合酸化物の製造方法として、ゾル溶液を酸素ガス存在中において35℃-60℃で熟成してゲル化し、得られたゲルを更に酸素ガス存在中において、60℃-140℃で12時間-48時間行う少なくとも第2熟成を行い安定化したゲルを得る工程について記載されていない。本願発明は上記構成により、平均細孔が2nm以下1nm以上のミクロメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物を製造できるという効果を有するものである(本願明細書第8頁第4-13行、実施例参照)

討する中で、前記前駆体を形成する段階において細孔の形成に重要な役割をした界面活性剤、特に水洗によって取り除くことができるノニオン界面活性剤を水洗によって取り除くことにより、前記前駆体の形成における細孔が反映されたメソポーラス金属酸化物が得られることを発見し前記課題を解決することができた。

#### 発明の開示

本発明は、(1)有機溶媒に高分子界面活性剤を溶解した溶液に、遷移金属酸化物の前駆体である遷移金属塩または／および金属アルコキシドを加え溶解させ、該遷移金属の塩または／および金属アルコキシドを加水分解、ポリマー化および自己組織化したゾル溶液とし、前記ゾル溶液を酸素ガス存在中において $35^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ で熟成してゲル化し、得られたゲルを更に酸素ガス存在中において $60^{\circ}\text{C} \sim 140^{\circ}\text{C}$ で12時間～48時間行う少なくとも第2熟成を行い安定化したゲルを得、前記安定化したゲルを室温の水またはアルカリ金属あるいはアルカリ土類金属イオンを添加した水により前記高分子界面活性剤を取り除いて平均細孔が2nm以下1nm以上のミクローメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物を製造する方法である。好ましくは、(2)ミクローメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物が表面積 $100\text{m}^2/\text{g} \sim 500\text{m}^2/\text{g}$ である前記(1)に記載のミクローメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物を製造する方法であり、また、好ましくは、(3)高分子界面活性剤がポリアルキレンオキサイドブロックコポリマー骨格を有するノニオン、例えばポリエチレンオキシド鎖 $(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_m$ とポリプロピレンオキシド鎖 $[\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)\text{O}]_n$ とから構成

5 / 1

されるブロックコポリマーからなるノニオン（ここで、 $m$ および $n$ は10～70であり、該ポリマーの末端はH、アルコールやフェノールでエーテル化されている）である前記（1）に記載のマイクロメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物を製造する方法であり、より好ましくは、（4）メソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物が表面積 $100\text{ m}^2/\text{g} \sim 500\text{ m}^2/\text{g}$ である前記（3）に記載のマイクロメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物を製造する方法である。



## 図面の簡単な説明

第1図は、実施例1で得られたマイクロメソポーラスニオブ酸化物のX線回折パターンを示し、Aは自己組織化で得られたゾル溶液を空气中で35～60℃で2日から10日かけて熟成を行いゲル化する第1段階の熟成のみのもの、B、CおよびDはそれぞれ、60℃、80℃および100℃において12～48時間の第2熟成をして細孔壁構造の安定化をした後、水によりテンプレート除去した場合を示す。

第2図は、実施例1で得られたマイクロメソポーラスニオブ酸化物のN<sub>2</sub>吸着等温線を示し、Aは、本発明に従って水洗浄によりテンプレートを除去して得られたマイクロメソポーラス製品の場合を、そして、Bは、従来技術のように焼成によりテンプレートを除去した場合を示す。

第3図は、実施例2の2－10日40℃熟成、更に温度100℃で24時間の第2段熟成をした後、水洗浄することによりテンプレートを除去して、平均細孔径が2nmであり、BET比表面積が210m<sup>2</sup>/gであるマイクロメソポーラス酸化マグネシウム－タンタルのX線回折パターンを示す。

第4図は、前記実施例2のマイクロメソポーラスの酸化マグネシウム－タンタルのN<sub>2</sub>吸着等温線を示す。

除去するため 300℃以上の温度で焼成する必要があるので、得られるメソポーラス構造は細孔直径の平均値が 2～6 nm の範囲であることと対比すれば明らかである。

C. 本発明の更なる特徴は、前記水によりテンプレート材料を除去するだけで、換言すれば、焼成による細孔壁の結晶安定化をすることなく、細孔構造の安定性があるミクローメソポーラス構造遷移金属酸化物を得ることができることである。すなわち、前記テンプレート除去前のミクローメソポーラス構造遷移金属酸化物前駆体の調製に、酸素ガス存在中において 35℃～60℃で熟成してゲル化したゲルを、更に酸素ガス存在中において 60℃～140℃で 12 時間～48 時間行う第 2 熟成を行うという工夫をし、安定性がある細孔構造を持つメソポーラス構造遷移金属酸化物が得られるようにしたことである。

D. 本発明においては、界面活性剤としては、公知の材料を 1 種類でも、あるいは 2 種類以上を組み合わせ用いることができる。反応系における界面活性剤、遷移金属の塩または／および金属アルコキシドと水との比は、規則的な細孔構造を形成させるのに重要なファクターである。また、この比の調整により、ヘキサゴナル構造、キュービック構造など、細孔の構造を調整することも可能である。

界面活性剤としては、ポリエチレンオキシド鎖 ( $\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O}$ )<sub>m</sub> とポリプロピレンオキシド鎖 [ $\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)\text{O}$ ]<sub>n</sub> とから構成されるブロックコポリマー (オリゴマーを含む) からなるノニオン界面活性剤 (ここで、m および n は 10～70 であり、該ポリマーの末端は H、アルコールやフェノールでエーテル化されている) が好ましい。

14

請 求 の 範 囲

1. (補正後)有機溶媒に高分子界面活性剤を溶解した溶液に、遷移金属酸化物の前駆体である遷移金属塩または／および金属アルコキシドを加え溶解させ、該遷移金属の塩または／および金属アルコキシドを加水分解、ポリマー化および自己組織化したゾル溶液とし、前記ゾル溶液を酸素ガス存在中において $35^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ で熟成してゲル化し、得られたゲルを更に酸素ガス存在中において $60^{\circ}\text{C} \sim 140^{\circ}\text{C}$ で12時間～48時間行う少なくとも第2熟成を行い安定化したゲルを得、前記安定化したゲルを室温の水またはアルカリ金属あるいはアルカリ土類金属イオンを添加した水により前記高分子界面活性剤を取り除いて平均細孔が2nm以下1nm以上のミクローメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物を製造する方法。

2. (補正後)ミクローメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物が表面積 $100\text{m}^2/\text{g} \sim 500\text{m}^2/\text{g}$ であることを特徴とする請求の範囲1.に記載のミクローメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物を製造する方法。

3. (削除)

4. (削除)

5. 高分子界面活性剤がポリアルキレンオキサイドブロックコポ

リマー骨格を有するノニオンであることを請求の範囲1.に記載の構造を持つ遷移金属酸化物を製造する方法。

6. (削除)

7. (補正後)ミクロメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物が表面積  $100 \text{ m}^2 / \text{g} \sim 500 \text{ m}^2 / \text{g}$  である請求の範囲5に記載のミクロメソポーラス構造を持つ遷移金属酸化物を製造する方法。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**